

氏 名	岡 本 健 三
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 179 号
学位授与の日付	平成 11 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科・専 攻	工芸科学研究科 機能科学専攻
学 位 論 文 題 目	Deformation and stress of dispersed phase in immiscible polymer blend melts
審 査 委 員	(主査) 教 授 高 橋 雅 興 教 授 柴 山 充 弘 教 授 前 川 善 一 郎

論 文 内 容 の 要 旨

非相溶性高分子ブレンドは比較的安価で高性能な材料として、工業的に様々な分野で利用されており、今後もより高性能な材料が開発されることが期待されている。非相溶性高分子ブレンドの物性はブレンドを構成する成分高分子の物性ととも、ブレンドのモルフォロジーに大きく左右される。ブレンドのモルフォロジーはブレンド作製プロセスで受ける変形・流動と生じる応力によって決まる。したがって、変形・流動、モルフォロジーと応力の関係について研究することは工業的に非常に意義深いことである。また、学問的にも界面を持つ系のモルフォロジーと応力の関係は興味ある問題であり、多くの研究が行われている。本論文は、非相溶性高分子ブレンドのモルフォロジーと応力の関係に注目し行われた研究の成果をまとめたものである。

論文は 6 章から構成されている。以下に各章の概要を示す。

第 1 章では、非相溶性高分子ブレンドを研究対象として選んだ動機、理論的背景及び本論文の目的が簡潔に述べられている。

第 2 章では、界面形状を表現する界面テンソルと応力との関連について調べている。ポリイソブチレン/ポリジメチルシロキサンプレンドにステップ状のせん断大変形を与えた際の緩和弾性率の時間変化とポリジメチルシロキサンプレンドマトリクス中に単一のポリイソブチレン液滴を含む系にステップ状のせん断大変形を加えた際の液滴の変形と形状回復の時間変化および両者の相関が述べられている。ブレンドの緩和弾性率測定では、高分子鎖の力学緩和より長い緩和時間を持つ緩和が、長時間側の平坦部として観測されている。形状観察で得られた液滴の界面形状から理論的予測に基づき緩和弾性率の時間依存性を計算したところ、応力緩和測定同様長い緩和時間を持つ平坦部が現れた。平坦部の弾性率のひずみ依存性や緩和曲線の形から判断して、液滴形状から計算した界面テンソルを用いて緩和弾性率の挙動をよく予測できることをはじめて明らかにした。

第 3 章では、液滴分散相を持つ非相溶性高分子ブレンドにおける力学緩和の機構を明らかにするために、ポリスチレン/ポリカーボネートブレンドの応力緩和と応力緩和過程でのモルフォロジーを観測している。モルフォロジー観察は、応力緩和途中で試料を冷却固化しモルフォロジーを固定して行われている。その結果、緩和弾性率の平坦部が液滴の変形と形状回復によることをはじめた明らかにした。さらに、ひずみを加えた直後の液滴形状はほぼアフィン変形をしており、配向角は時間が経過しても変化しないことも明らかにした。また、土井-太田理論の速度式に基づいて緩和弾性率を計算し、その結果が実験結果と一致しないことを示している。

第4章では、ポリスチレン／ポリメチルメタクリレートブレンドの動的粘弾性測定を行い、液滴の微小変形をモデル化して構築された Palierne の理論との比較から界面張力を求めている。得られた界面張力の値は他の方法で求めた値に近いことを示している。

第5章では、高分子溶融物間の界面張力を得るための簡便な方法である埋め込み繊維収縮 (IFR) 法が改良されている。Cohen と Carriere が提案した非相溶性のマトリクス中の繊維に対する力の釣り合いの式を回転楕円体に対して解き、流体力学係数を理論的に 0.125 と求めている。改良した IFR 法を用いて測定したポリスチレンとポリメチルメタクリレートの界面張力がブレーキングスレッド法で求めた値とほぼ一致することを示している。

第6章では、本論文で得られた結論が総括されている。

論文審査の結果の要旨

本論文の前半は非相溶性高分子ブレンド溶融物の応力緩和挙動、モルフォロジーと応力の関係、液滴の変形と形状回復を明らかにしている。後半は従来の方法を改良した新しい界面張力測定方法により界面張力を測定している。また、得られた界面張力の値をブレーキングスレッド法、動的粘弾性法を用いて得た値と比較することによってその値が妥当であることを示している。これらの結果は非相溶性高分子ブレンドのモルフォロジーとレオロジーに対し非常に有意義な成果を含んでおり、学問的のみならず、高分子ブレンドの工業的な利用に対しても多くの示唆を与えるものである。

非相溶性高分子ブレンドのモルフォロジーとレオロジーに関して従来多くの報文が発表されているが、本論文のようにモルフォロジーと応力を同一の試料に対し同一の変形様式下で観測したものはほとんどない。また、多くの研究は液滴の変形と形状回復が同時に生ずる複雑な流動状態での挙動を調べているのに対し、本論文では瞬間的なステップ変形以外は外部から加えられる流動がなく、液滴の形状回復のみが生ずるときの挙動を調べている。このような研究は、まぎれがなく単純化された状況における高分子ブレンドのレオロジーに関する明確な実験的事実を与えるとともに、理論的な取り扱いを行う際にきわめて有用な情報を与える。

本論文の内容は、審査システムの確立している学会誌に次の3報が発表および印刷中である。

- ・ Kenzo Okamoto, Masaaki Takahashi, Hideki Yamane, Hisahiko Kashiara and Toshiro Masuda, Droplet Phase and Dynamic Viscoelasticity of PMMA/PS Blend Melts, J. Soc. Rheol., Japan, 25, 199-200 (1997).
 - ・ Kenzo Okamoto, Masaaki Takahashi, Hideki Yamane, Hideyuki Watashiba, Yasuhisa Tsukahara and Toshiro Masuda, Measurement of Interfacial Tension between Polymer Melts: Improved Imbedded Fiber Retraction, Breaking Thread and Dynamic Viscoelasticity Methods, J. Soc. Rheol., Japan, 27, 109-115 (1999).
 - ・ Kenzo Okamoto, Masaaki Takahashi, Hideki Yamane, Hisahiko Kashiara, Hiroshi Watanabe and Toshiro Masuda, Shape recovery of a dispersed droplet phase and stress relaxation after application of step shear strains in a polystyrene/polycarbonate blend melt, J. Rheol., in press.
- また、次の1報は他の学位申請予定者らとの共同研究である。
- ・ Hideki Yamane, Masaaki Takahashi, Rika Hayashi, Kenzo Okamoto, Hisahiko Kashiara and Toshiro Masuda, Observation of deformation and recovery of poly(isobutylene) droplet in a poly(isobutylene)/poly(dimethyl siloxane) blend after application of step shear strain, J. Rheol., 42, 567-580 (1998).